



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



⑪ Número de publicación: **2 217 980**

⑫ Número de solicitud: 200301058

⑮ Int. Cl.7: **C07C 2/54**
C07C 15/085
C07C 15/073
B01J 29/04

⑫

PATENTE DE INVENCION

B1

⑫ Fecha de presentación: **30.04.2003**

⑬ Fecha de publicación de la solicitud: **01.11.2004**

Fecha de la concesión: **28.10.2005**

⑮ Fecha de anuncio de la concesión: **16.12.2005**

⑮ Fecha de publicación del folleto de la patente:
16.12.2005

⑰ Titular/es: **Universidad Politécnica de Valencia**
Camino de Vera, s/n
CTT-Edificio, I1 y I2
46022 Valencia, ES
Consejo Superior de Investigaciones Científicas
(CSIC)

⑱ Inventor/es: **Corma Canós, Avelino;**
Rey García, Fernando y
Valencia Valencia, Susana

⑳ Agente: **No consta**

㉔ Título: **Procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos.**

㉕ Resumen:

Procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos.

La presente invención se refiere a un procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos, caracterizado porque comprende hacer reaccionar bajo condiciones de alquilación, en las que existe al menos parcialmente fase líquida, un agente alquilante seleccionado entre una olefina, un alcohol, un compuesto polialquilado, y mezclas de ellos, con un compuesto aromático de partida, en presencia de un catalizador, siendo dicho catalizador un material cristalino microporoso de naturaleza zeolítica denominado ITQ-22. Se considera que el catalizador y la aplicación a que se refiere la presente invención es particularmente valioso para la producción de cumeno.

ES 2 217 980 B1

Aviso: Se puede realizar consulta prevista por el art. 37.3.8 LP.

DESCRIPCIÓN

Procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos.

5 **Campo de la técnica**

La presente invención se engloba en el campo de la catálisis heterogénea.

Antecedentes

10 El cumeno es un producto de interés comercial que se utiliza como materia prima para la producción de fenol y acetona. Numerosos trabajos han sido desarrollados utilizando catalizadores ácidos. Una referencia general sobre los catalizadores y procesos utilizados se puede encontrar en: "Encyclopedia of Chemical Processing and Design" J.J. McKezta and W.A. Cunningham Editors, V.14, pp. 33-55 (1982). El proceso de alquilación de benceno con propileno, además de buscar una alta conversión de propileno y una alta selectividad al producto monoalquilado isopropilbenceno (cumeno) requiere minimizar la cantidad de n-propil benceno (NPB) formada. Esto es debido a que el NPB interfiere en el proceso de oxidación de cumeno para producir fenol y acetona, y consiguientemente se requiere una corriente de cumeno con las mínimas impurezas de NPB posibles. Dado que resulta difícil separar cumeno y NPB por métodos convencionales, como por ejemplo destilación, se comprende que el rendimiento a NPB deba ser lo menor posible y en cualquier caso muy bajo, durante la alquilación del benceno con propileno.

Desde el punto de vista de los catalizadores utilizados en este proceso, convencionalmente se han utilizado ácidos tales como H_3PO_4 , $AlCl_3$ y HCl , aunque presentan problemas derivados de corrosión y pérdida de selectividad por formación de productos polialquilados. También se han empleado zeolitas como catalizadores de alquilación de aromáticos y, así se describe por ejemplo, la zeolita ZSM-5 en la patente US 429457 como catalizador de alquilación de benceno con propileno.

Sin embargo, probablemente por el reducido diámetro de sus canales, esta zeolita se muestra poco selectiva para el proceso deseado. Existen también numerosas patentes que describen el uso de Faujasita y Faujasitas modificadas como catalizadores para la producción de cumeno por alquilación de benceno con propileno. Más específicamente, la zeolita Y muestra una buena actividad a temperaturas entre 130 y 180°C con una buena selectividad a los productos deseados. Sin embargo esta selectividad sufre un fuerte descenso cuando se aumenta la conversión de benceno y es, por tanto, obligatorio trabajar con elevadas relaciones benceno/propileno en la alimentación. Esto conlleva altos costes en el reciclado de benceno. La zeolita Beta ha sido también reivindicada como catalizador de alquilación de benceno con propileno en diversas patentes como por ejemplo: US-4891458, US-5030786, EP-432814, EP-439632, EP-629599. Esta zeolita produce buenos resultados en actividad y selectividad, pero su comportamiento es mejorable tanto en lo referente a selectividad a NPB, como en lo concerniente a la estabilidad del catalizador. Recientemente, se ha reivindicado el uso de una nueva zeolita (MCM-22).

La presente invención se refiere a un procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos mediante el uso de un catalizador, denominado ITQ-22. De manera particular la alquilación de productos aromáticos se realiza con olefinas, alcoholes o productos aromáticos polialquilados. El catalizador ITQ-22 no sólo es activo sino que, en el caso del cumeno, produce un rendimiento muy bajo de n-propilbenceno, producto no deseado.

45 **Descripción de la invención**

La presente invención se refiere a un procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos alquilados, caracterizado porque comprende hacer reaccionar bajo condiciones de alquilación, en las que existe al menos parcialmente fase líquida, un agente alquilante seleccionado entre una olefina, un alcohol, un compuesto aromático polialquilado, y mezclas de ellos, con un compuesto aromático de partida, en presencia de un catalizador, siendo dicho catalizador un material cristalino microporoso de naturaleza zeolítica denominado ITQ-22, que tiene, en estado calcinado la fórmula empírica



en la que

M es H^+ o al menos un catión inorgánico de carga +n,

X es al menos un elemento químico de estado de oxidación +3,

Y es al menos un elemento químico con estado de oxidación +4 distinto de Si y Ge;

65 x tiene un valor inferior a 0,2,

y tiene un valor menor de 0,1, y

ES 2 217 980 B1

z tiene un valor inferior a 0,8,

y que en su forma calcinada presenta un patrón de difracción de rayos X incluyendo, al menos, los picos recogidos en la Tabla 1.

TABLA 1

2θ (grados) ± 0.5	Intensidad relativa (I/I_0)
6.9	m
8.0	mf
8.4	mf
9.2	m
10.6	mf
20.1	m
21.7	m
22.5	mf

donde m es una intensidad relativa media entre 20 y 40%, y mf es una intensidad relativa muy fuerte entre 60 y 100%.

Las posiciones, anchuras e intensidades relativas de los picos de difracción pueden modificarse según la composición química del material, así como por el grado de hidratación, el tamaño y forma de los cristales, orientaciones preferentes o el tipo de tratamientos térmicos o hidrotérmicos sufridos por el material. La figura 1 muestra el difractograma de ITQ-22 en estado calcinado.

En la fórmula anterior:

- M es H⁺ o al menos un catión inorgánico de carga +n, preferentemente seleccionado entre Na⁺, K⁺, Cs⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Ni²⁺, Cu²⁺ y Co²⁺,

- X está preferentemente seleccionado entre el grupo formado por Al, Ga, B, Fe y Cr;

- Y está preferentemente seleccionado entre el grupo formado por Ti, Sn y V;

- x tiene un valor, preferentemente inferior a 0.1,

- y tiene un valor preferentemente menor de 0.05, y

- z tiene un valor preferentemente entre 0.005 y 0.5.

El catalizador de la presente invención se puede preparar por síntesis hidrotermal de una mezcla que contenga una fuente de elemento o elementos tetravalentes, de la que son ejemplos no limitantes tetraetilortosilicato, sílice amorfa, sílice con estructura mesoporosa con o sin orden a larga distancia, óxido de germanio, alcóxidos de germanio, etc., una fuente de elemento o elementos trivalentes, de la que son ejemplos no limitantes alcóxidos de aluminio, alúmina o aluminio metálico, un agente orgánico director de estructura (ADE) y agua. Como agente director de estructura se puede utilizar una sal del dicatión amonio cuaternario 1,5-bis (metilpirrolidinio) pentano o el correspondiente hidróxido.

Las relaciones en que los distintos componentes se encuentran en la mezcla de síntesis vienen dadas por las siguientes proporciones:

T^{IV}/T^{III} entre 5 y ∞

ADE/T^{IV} entre 0.01 y 1

H_2O/T^{IV} entre 1 y 100

La mezcla resultante se introduce en una autoclave de acero con funda de teflón y se calienta a la temperatura

ES 2 217 980 B1

5 deseada (entre 80 y 200°C) durante un tiempo comprendido entre 1 y 30 días. El contenido del autoclave se filtra, lava y seca. En el sólido obtenido se elimina la materia orgánica por métodos conocidos en la literatura, tal y como por ejemplo: calcinación en presencia de N₂ seguida por calcinación en aire, calcinación directa en aire, extracción del orgánico con ácidos minerales u orgánicos, o por un tratamiento con ozono. El material resultante presenta un patrón de difracción de rayos X en el que, al menos, están presentes las líneas listadas en la Tabla 1.

10 El catalizador se peletiza. Los medios mediante los cuales se peletiza el catalizador son bien conocidos en la literatura, utilizando un diluyente como por ejemplo SiO₂ o Al₂O₃, o una arcilla, zirconia, óxido de Magnesio o mezcla de éstas, en proporciones zeolita/diluyente entre 20 y 95% y preferentemente entre 40 y 90% en peso.

En una realización alternativa, el catalizador calcinado se puede tratar con una disolución acuosa de un ácido mineral como por ejemplo HNO₃, H₂SO₄, H₃PO₄, HClO₄.

15 Mediante el tratamiento con dicha disolución acuosa de ácido mineral se alcanza un pH entre 0 y 1.5, a temperaturas entre 20 y 100°C en un tiempo entre 10 y 400 minutos, según las concentraciones de ácido y la temperatura de tratamiento. La relación catalizador a disolución acuosa de ácido está comprendida entre 0.05 y 1, y preferentemente entre 0.1 y 0.5 en peso.

20 El catalizador resultante, tratado o no con ácido, pero conteniendo centros ácidos en su estructura, una vez calcinado a temperatura entre 450 y 700°C, se utiliza como catalizador en el procedimiento de la presente invención.

Según el procedimiento de la presente invención la reacción de alquilación se realiza preferentemente con una relación molar de agente alquilante a compuesto aromático de partida de entre 2 y 20, en presencia del catalizador.

25 Según el procedimiento de la presente invención cuando el agente alquilante es uno seleccionado entre una olefina, un alcohol, y mezclas de ellos, dicha olefina y dicho alcohol contienen preferentemente desde 2 hasta 20 átomos de carbono.

30 De manera preferente el compuesto aromático de partida está seleccionado del grupo formado por benceno, naftaleno, antraceno, fenantreno y derivados sustituidos de ellos.

De manera más preferente aún el compuesto aromático de partida es benceno.

35 Según una realización alternativa del procedimiento de la presente invención el compuesto aromático de partida está seleccionado entre alquilbenceno, alquilantraceno, alquilfenantreno hidroxibenceno, hidroxinaftaleno, hidroxiantraceno, hidroxifenantreno, alcobenceno, alcovinaftaleno, alcoviantraceno y alcovifenantreno.

40 Según el procedimiento de la presente invención el agente alquilante es preferentemente un compuesto aromático polialquilado y el compuesto aromático de partida es un compuesto aromático no alquilado, de modo que durante la alquilación al menos un grupo alquilo se transfiere del compuesto aromático polialquilado al compuesto aromático de partida.

45 Cuando el agente alquilante es un compuesto aromático polialquilado el grupo alquilo o los grupos alquilo de dicho compuesto aromático polialquilado pueden contener un número variable de átomos de carbono. De manera preferente dicho o dichos grupos alquilo pueden contener desde 2 hasta 20 átomos de carbono, preferentemente desde 6 hasta 20 átomos de carbono.

50 Cuando el agente alquilante es un compuesto aromático polialquilado y el compuesto aromático de partida es un compuesto aromático no alquilado dicho compuesto aromático de partida está preferentemente seleccionado entre benceno, naftaleno, antraceno, fenantreno, benceno sustituido, naftaleno sustituido, antraceno sustituido y fenantreno sustituido.

55 Según una realización particular del procedimiento de la presente invención el agente alquilante es un compuesto aromático polialquilado y el compuesto aromático de partida es benceno. De forma más preferente aún dicho compuesto aromático polialquilado es poliisopropilbenceno y el compuesto aromático de partida es benceno.

Una realización alternativa preferida se refiere a la alquilación de benceno con un agente alquilante seleccionado entre propileno, etileno, alcohol etílico, alcohol propílico y mezclas de ellos.

60 De manera preferente el procedimiento de la presente invención se refiere a la alquilación de benceno con propileno, obteniendo como compuesto aromático alquilado el cumeno.

La reacción de alquilación según el procedimiento de la presente invención se lleva a cabo a una temperatura de reacción entre 60 y 350°C, y preferentemente entre 80 y 300°C.

65 Según el procedimiento de la presente invención la reacción de alquilación se realiza a una presión suficiente para mantener, al menos parcialmente, una fase líquida. La presión está preferentemente en un intervalo entre 1.4 y 7.0 MPa, y más preferentemente entre 1.4 y 4.1 MPa.

ES 2 217 980 B1

En la reacción de alquilación según el presente procedimiento la velocidad espacial (WHSV) de reactivos está comprendida entre 0.2 y 150 horas⁻¹ y preferentemente entre 0.5 y 10 horas⁻¹.

Una realización particularmente preferida del procedimiento se refiere a la reacción de alquilación de benceno con propileno, la cual se realiza preferentemente bajo las siguientes condiciones: la temperatura de reacción está comprendida entre 60 y 350°C, y preferentemente entre 80 y 300°C; la presión a la que se lleva a cabo es además una presión suficiente para mantener, al menos parcialmente, una fase líquida, estando preferentemente en un intervalo entre 1.4 y 7.0 MPa, y más preferentemente entre 1.4 y 4.1 Mpa; la velocidad espacial (WHSV) de reactivos está comprendida entre 0.2 y 150 horas⁻¹ y preferentemente entre 0.5 y 10 horas⁻¹ y la relación molar benceno/propileno está entre 2 y 20, y preferentemente entre 2 y 15.

Según el procedimiento de la presente invención se usa una cantidad adecuada del catalizador junto con un compuesto seleccionado entre olefinas, alcoholes, compuestos aromáticos polialquilados y mezclas de éstos en la alquilación de compuestos aromáticos.

Según esta invención, en los catalizadores ácidos preparados con la estructura cristalina de ITQ-22, se ha encontrado que, cuando se aplica en su forma ácida en la alquilación de aromáticos con olefinas o alcoholes, y más específicamente cuando se utiliza como catalizador en la alquilación de benceno con propileno resulta ser un catalizador muy activo; y con una sorprendente baja selectividad para la producción de NPB. Más aún, la selectividad a cumeno puede ser aumentada introduciendo por intercambio iónico en el material cantidades adecuadas de metales alcalinos, alcalinotérreos o cationes metálicos. Puede ser también aumentada su selectividad eliminando la acidez superficial mediante la extracción de cationes trivalentes de la red, como por ejemplo Al y/o B mediante un tratamiento con ácidos minerales u otros agentes químicos capaces de extraer dichos elementos. Los catalizadores basados en los tratamientos de intercambio catiónico o "leaching" nombrados arriba permiten disminuir la formación de productos polialquilados.

Los catalizadores así obtenidos y formulados con los diluyentes y proporciones antes descritos, se utilizan en las condiciones y sistemas de reacción antes descritos para la alquilación de aromáticos con olefinas, alcoholes o compuestos aromáticos polialquilados, y más específicamente para la alquilación de benceno con propileno.

A continuación se describen una serie de ejemplos ilustrativos sobre la preparación del catalizador y su utilización en la alquilación de aromáticos con olefinas y alcoholes, ilustrados a través de la alquilación de benceno con propileno.

Ejemplos

Ejemplo 1

Este ejemplo ilustra la preparación de un catalizador sólido cristalino ácido (ITQ-22) cuya aplicación en alquilación de aromáticos es el objeto de esta invención.

Se añaden 0.325 g de isopropóxido de Al sobre 11.05 g de tetraetilortosilicato (TEOS). A continuación se adicionan 34.2 g de una disolución de dihidróxido de 1,5-bis (metilpirrolidinio) pentano (R(OH)₂) que contiene 1.2 equivalentes de hidróxido en 1000 g y, posteriormente, se disuelven 2.77 g de óxido de germanio. Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en autoclaves provistos de una funda interna de politetrafluoretileno y se calientan a 175°C durante 12 días. El sólido obtenido se filtra, se lava con agua destilada, se seca a 100°C y se calcina en aire a 580°C durante 3 horas. El diagrama de difracción de rayos X de este material presenta los picos presentes en la tabla 2. El análisis químico de la zeolita calcinada indica que ésta tiene una composición acorde con las relaciones molares Si/Ge = 5 y (Si+Ge)/Al = 30.

TABLA 2

2θ (grados)	Intensidad relativa (I/I ₀)
4.34	d
7.15	m
8.17	mf

ES 2 217 980 B1

TABLA 2 (continuación)

2θ (grados)	Intensidad relativa (I/I_0)
8.57	mf
9.46	m
10.17	d
10.80	mf
11.77	d
16.23	d
16.41	d
20.34	m
20.79	d
21.89	m
22.40	d
22.74	mf
24.37	d
25.40	d
28.17	d
28.38	d

Ejemplo 2

Este ejemplo ilustra la preparación de un catalizador ITQ-22 de composición diferente del ilustrado en el ejemplo 1 cuya aplicación en alquilación de aromáticos es el objeto de esta invención.

Se añaden 0.097 g de isopropóxido de Al sobre 9 g de tetraetilortosilicato (TEOS). A continuación se adicionan 20.68 g de una disolución de dihidróxido de 1,5-bis (metilpirrolidinio) pentano ($R(OH)_2$) que contiene 1.2 equivalentes de hidróxido en 1000 g y, posteriormente, se disuelven 0.45 g de óxido de germanio. Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 175°C durante 12 días. El sólido obtenido se filtra, se lava con agua destilada, se seca a 100°C y se calcina en aire a 580°C durante 3 horas. El diagrama de difracción de rayos X de este material presenta los picos que se muestran en la tabla 2. El análisis químico de la zeolita calcinada indica que ésta tiene una composición acorde con las relaciones molares Si/Ge = 9 y (Si+Ge)/Al = 90.

Ejemplo 3

El presente ejemplo ilustra la utilización de un material preparado según el ejemplo 1 como catalizador en alquilación de benceno con propileno.

Una muestra del material preparado según el ejemplo 1, se pastilló, seleccionando el tamaño de partícula entre 0.25 y 0.42 mm, para llevar a cabo la reacción. La zeolita (0.55 g) se diluyó con carburo de silicio (0.59-0.84 mm) en una relación SiC/zeolita de 5 en peso. El catalizador diluido se introdujo en un reactor tubular de acero de 1 cm

ES 2 217 980 B1

de diámetro, y se pasaron 100 mL.min⁻¹ en condiciones estándar de N₂ a 150°C durante 1.5 horas. A continuación, se bajó la temperatura hasta 20°C y se interrumpió el flujo de N₂. En este punto se alimenta benceno (1200 μL.min⁻¹) y se sube la presión hasta 3.5 MPa. Cuando se alcanza la presión 3.5 MPa, se sube la temperatura hasta 125°C y se comienza a alimentar el propileno (270 μL.min⁻¹), siendo la relación molar benceno/propileno de 3.4.

Los resultados de propileno convertido se presentan en la Tabla 3.

TABLA 3

Conversión y selectividad en la alquilación de benceno con propileno a 125°C, B/P = 3.4 mol.mol⁻¹, WHSV prop = 6 h⁻¹, P = 3.5 MPa para el catalizador ITQ-22 preparado según el ejemplo 1

Tiempo reacción (min)	Conversión (%)	Selectividad referida a propileno (%)			
		Cumeno	DIPB	NPB	Otros
15	95.62	93.09	6.70	0.04	0.17
60	98.02	93.01	6.73	0.05	0.22
100	97.23	93.89	5.75	0.03	0.33
140	96.30	95.83	3.83	0.03	0.31
180	97.94	95.55	4.27	0.03	0.15

En este ejemplo se pueden observar valores de selectividad a cumeno muy elevados y valores muy bajos de NPB y diisopropilbenceno (DIPB), menores que los obtenidos utilizando zeolita Beta como catalizador en las mismas condiciones de reacción. Los resultados obtenidos con una zeolita Beta comercial de Si/Al=13 suministrada por Zeolyst (código CP811) se muestran en la Tabla 4.

TABLA 4

Conversión y selectividad en la alquilación de benceno con propileno a 125°C, B/P = 3.4 mol.mol⁻¹, WHSV prop = 6 h⁻¹, P = 3.5 MPa para un catalizador comercial de zeolita Beta (Si/Al = 13)

Tiempo reacción (min)	Conversión (%)	Selectividad referida a propileno (%)			
		Cumeno	DIPB	NPB	Otros
20	98.07	91.35	8.45	0.04	0.16
90	97.36	92.41	7.35	0.05	0.19
160	98.54	90.84	8.85	0.05	0.26
210	99.65	93.28	6.49	0.05	0.18

De la comparación de los resultados presentados en las Tablas 3 y 4 se muestra que la zeolita ITQ-22 presenta una mayor selectividad a cumeno y menor a n-propilbenceno que la zeolita Beta que es el catalizador zeolítico más utilizado en la actualidad para producir cumeno.

Ejemplo 4

El presente ejemplo muestra la influencia de la temperatura de reacción sobre la conversión y selectividad para la alquilación de benceno con propileno utilizando el mismo catalizador que en el ejemplo 3, siendo el resto de las condiciones de reacción las mismas que en el ejemplo 3.

Los resultados de conversión con el tiempo de reacción se presentan en la Tabla 5.

TABLA 5

Conversión y selectividad en la alquilación de benceno con propileno a 150°C, B/P = 3.4 mol.mol⁻¹, WHSV prop = 6 h⁻¹, P = 3.5 MPa, para el catalizador ITQ-22 preparado según el ejemplo 1

Tiempo reacción (min)	Conversión (%)	Selectividad referida a propileno (%)			
		cumeno	DIPB	NPB	Otros
20	99.51	97.25	2.62	0.06	0.07
60	98.70	94.17	5.62	0.07	0.14
100	99.41	96.10	3.77	0.06	0.07
180	99.31	95.04	4.74	0.06	0.16

Ejemplo 5

El presente ejemplo ilustra la utilización de un material preparado según el ejemplo 1 como catalizador en alquilación de benceno con etileno.

Una muestra del material preparado según el ejemplo 1, se pastilló y se seleccionó el tamaño de partícula entre 0.25 y 0.42 mm para llevar a cabo la reacción. Así, 0.55 g de la zeolita se diluyeron en 1.57 g de carburo de silicio (0.59-0.84 mm). El catalizador diluido se introdujo en un reactor de acero de 1 cm de diámetro. La activación del catalizador fue la misma que en el ejemplo 3. En el presente ejemplo la temperatura de reacción fue de 220°C, alimentándose 2.90 mmoles de benceno y 0.30 mmoles de etileno, siendo la presión del proceso de 3.5 MPa. Los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 6.

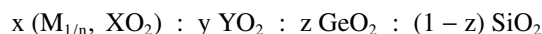
TABLA 6

Conversión y selectividad en la alquilación de benceno con etileno a 220°C, B/E = 9.6 mol.mol⁻¹, WHSV etil = 1.0 h⁻¹, P = 3.5 MPa, para el catalizador Al-ITQ-22 preparado según el ejemplo 1

t reacción (min)	Conversión Etileno (%)	Selectividad (%)			
		Etil benceno	Butil benceno	Dietil benceno	Trietil benceno
30	99.40	98.20	0.09	1.71	0.00
120	99.20	98.10	0.10	1.80	0.00
210	99.10	97.47	0.16	2.37	0.00
300	99.18	98.54	0.09	1.36	0.01
420	99.52	97.67	0.12	2.19	0.02

REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento para la alquilación de compuestos aromáticos, **caracterizado** porque comprende hacer reaccionar bajo condiciones de alquilación, en las que existe al menos parcialmente fase líquida, un agente alquilante seleccionado entre una olefina, un alcohol, un compuesto polialquilado, y mezclas de ellos, con un compuesto aromático de partida, en presencia de un catalizador, siendo dicho catalizador un material cristalino microporoso de naturaleza zeolítica denominado ITQ-22, que tiene, en estado calcinado la fórmula empírica



en la que

M es H⁺ o al menos un catión inorgánico de carga +n,

X es al menos un elemento químico de estado de oxidación +3,

Y es al menos un elemento químico con estado de oxidación +4 distinto de Si y Ge;

x tiene un valor inferior a 0,2,

y tiene un valor menor de 0,1, y

z tiene un valor inferior a 0,8

y que en su forma calcinada presenta un patrón de difracción de rayos X incluyendo, al menos, los picos listados

2θ (grados) \pm 0.5	Intensidad relativa (I/I ₀)
6.9	m
8.0	mf
8.4	mf
9.2	m
10.6	mf
20.1	m
21.7	m
22.5	mf

donde

m es una intensidad relativa media entre 20 y 40%, y mf es una intensidad relativa muy fuerte entre 60 y 100%.

2. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el compuesto aromático de partida está seleccionado del grupo formado por benceno, naftaleno, antraceno, fenantreno y derivados sustituidos de ellos.

3. Un procedimiento según la reivindicación 2, en el que el compuesto aromático de partida es benceno.

4. Un procedimiento según la reivindicación 2, en el que el compuesto aromático de partida está seleccionado entre alquilbenceno, alquilantraceno, alquilfenantreno hidroxibenceno, hidroxinaftaleno, hidroxiantraceno, hidroxifenantreno, alcoxibenceno, alcoxinaftaleno, alcoxiantraceno y alcoxifenantreno.

5. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el agente alquilante está seleccionado entre una olefina, un alcohol, y mezclas de ellos y dicha olefina y dicho alcohol contienen desde 2 hasta 20 átomos de carbono.

6. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el agente alquilante es un compuesto aromático polialquilado.

7. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el agente alquilante es un compuesto aromático polialqui-

ES 2 217 980 B1

lado y el compuesto aromático de partida es un compuesto aromático no alquilado, y en el que durante la alquilación al menos un grupo alquilo se transfiere del compuesto aromático polialquilado al compuesto aromático de partida.

5 8. Un procedimiento según la reivindicación 7 en el que dicho compuesto aromático polialquilado contiene al menos un grupo alquilo que comprende desde 2 hasta 20 átomos de carbono.

9. Un procedimiento según la reivindicación 7 en el que dicho compuesto aromático polialquilado contiene al menos un grupo alquilo que comprende desde 6 hasta 20 átomos de carbono.

10 10. Un procedimiento según la reivindicación 7 en el que el compuesto aromático de partida está seleccionado entre benceno, naftaleno, antraceno, fenantreno, benceno sustituido, naftaleno sustituido, antraceno sustituido y fenantreno sustituido.

15 11. Un procedimiento según la reivindicación 7 en el que el compuesto aromático polialquilado es un poliisopropilbenceno y el compuesto aromático de partida es benceno.

12. Un procedimiento según la reivindicación 1, en que el compuesto aromático alquilado es cumeno, el compuesto aromático de partida es benceno y el agente alquilante es propileno.

20 13. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que la reacción de alquilación se lleva a cabo a una temperatura de reacción entre 60 y 350°C.

25 14. Un procedimiento según la reivindicación 1 en el que la reacción de alquilación se lleva a cabo a una presión entre 1.4 y 7.0 Mpa.

15. Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el agente alquilante y el compuesto aromático de partida están presentes en una proporción entre 2 y 20, en presencia del catalizador.

30 16. Un procedimiento según la reivindicación 1, en que el compuesto aromático alquilado es cumeno, el compuesto aromático de partida es benceno y el agente alquilante es propileno; la reacción de alquilación se lleva a cabo a una temperatura de reacción entre 60 y 350°C; la presión a la que se lleva a cabo la reacción de alquilación está comprendida entre 1.4 y 7.0 Mpa; la velocidad espacial (WHSV) de reactivos entre 0.2 y 150 horas⁻¹ y la relación molar benceno/propileno está comprendida entre 2 y 20.

35

40

45

50

55

60

65

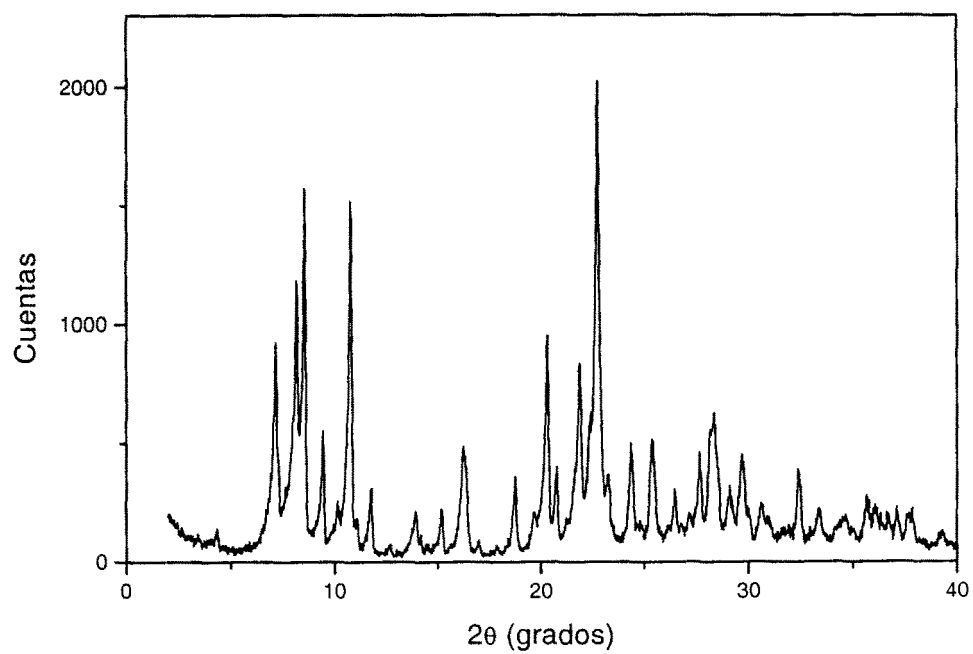


Figura 1. Difractograma de Rayos X de zeolita ITQ-22 calcinada.



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

⑪ ES 2 217 980

⑫ Nº de solicitud: 200301058

⑬ Fecha de presentación de la solicitud: 30.04.2003

⑭ Fecha de prioridad:

INFORME SOBRE EL ESTADO DE LA TÉCNICA

⑮ Int. Cl.7: C07C 2/54, 15/085, 15/073, B01J 29/04

DOCUMENTOS RELEVANTES

Categoría	Documentos citados	Reivindicaciones afectadas
A	WO 9817581 A (INSTITUT FRANÇAIS DU PETROLE) 30.04.1998, todo el documento.	1-16
A	US 5068096 A (VALYOCSIK) 26.11.1991, todo el documento.	1-16

Categoría de los documentos citados

X: de particular relevancia

Y: de particular relevancia combinado con otro/s de la misma categoría

A: refleja el estado de la técnica

O: referido a divulgación no escrita

P: publicado entre la fecha de prioridad y la de presentación de la solicitud

E: documento anterior, pero publicado después de la fecha de presentación de la solicitud

El presente informe ha sido realizado

☒ para todas las reivindicaciones

☐ para las reivindicaciones nº:

Fecha de realización del informe

30.09.2004

Examinador

N. Vera Gutiérrez

Página

1/1